

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-249603
(43)Date of publication of application : 06.09.2002

(51)Int.Cl. C08J 5/18
B32B 27/36
B65D 30/02
B65D 65/46
C08K 5/06
C08K 5/103
C08L 67/04

(21)Application number : 2001-051419 (71)Applicant : MITSUI CHEMICALS INC
(22)Date of filing : 27.02.2001 (72)Inventor : KUROKI TAKAYUKI
WATANABE TAKAYUKI
KITAHARA YASUHIRO
TAKEHARA AKINOBU
OBUCHI SEIJI

(54) ALIPHATIC POLYESTER FILM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To prepare an aliphatic polyester film having n excellent flexibility, transparency, heat resistance and adhesion properties.

SOLUTION: The aliphatic polyester film has at least one layer including 10-60 pts.wt. of at least one compound selected from a compound (A) represented by formula (1): $CR_1H_2CR_2H(OCR_3HCR_4H)_nH...$ (1) wherein (n) is an integer of 1-10, and R1-R4 are each a 1-18C acyl group, and a compound (B) which is a reaction product of a condensate of 1-10 molecules of glycerol with a 6-18C carboxylic acid per 100 pts.wt. of the aliphatic polyester, and has a storage modulus (E') of $1 \times 10^7 - 2 \times 10^9$ Pa and a loss tangent (tan δ) of 0.1-1.0.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 8 J 5/18	C F D	C 0 8 J 5/18	3 E 0 6 4
B 3 2 B 27/36		B 3 2 B 27/36	3 E 0 8 6
B 6 5 D 30/02		B 6 5 D 30/02	4 F 0 7 1
65/46		65/46	4 F 1 0 0
C 0 8 K 5/06		C 0 8 K 5/06	4 J 0 0 2
審査請求 未請求 請求項の数9 O L （全 10 頁） 最終頁に続く			

(21)出願番号	特願2001－51419(P2001－51419)	(71)出願人	000005887 三井化学株式会社 東京都千代田区霞が関三丁目 2 番 5 号
(22)出願日	平成13年 2 月27日(2001. 2. 27)	(72)発明者	黒木 孝行 愛知県名古屋市南区丹後通 2－1 三井化学株式会社内
		(72)発明者	渡辺 孝行 千葉県袖ヶ浦市長浦580－32 三井化学株式会社内
		(74)代理人	100076613 弁理士 苗村 新一 (外 1 名)
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 脂肪族ポリエステルフィルム

(57)【要約】
【課題】 優れた柔軟性、透明性、耐熱性及び密着性を有する脂肪族ポリエステルフィルムを提供する。 *
$$\text{C R}^1\text{H}_2\text{C R}^2\text{H (O C R}^3\text{H C R}^4\text{H) n H} \cdots (1)$$

(式中、nは1～10の整数、R¹～R⁴は炭素数1～18のアシル基である)で示される化合物(A)、及びグリセリン1～10分子の縮合物と炭素数6～18のカルボン酸との反応生成物である化合物(B)から選ばれた少なくとも1種の化合物10～60重量部を含む層を少

* 【解決手段】 脂肪族ポリエステル100重量部に対し、一般式(1)
なくとも一層有する、20℃における貯蔵弾性率(E')が1×10⁷～2×10⁹Pa、損失正接(tanδ)が0.1～1.0である脂肪族ポリエステルフィルム。

1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 脂肪族ポリエステル 1 0 0 重量部に対し、一般式（1）〔化 1〕

【化 1】

$$\begin{array}{c} \text{H} & \text{H} \\ | & | \\ \text{H}-\text{C}-\text{C}-\left[\text{O}-\text{C}-\text{C}-\right]_n-\text{H} \cdots (1) \\ | & | \\ \text{R}_1 & \text{R}_2 \end{array}$$

（式中、n は 1 ～ 1 0 の整数、R₁ ～ R₄ は炭素数 1 ～ 1 8 のアシル基である）で示される化合物（A）、及びグリセリン 1 ～ 1 0 分子の縮合物と炭素数 6 ～ 1 8 のカルボン酸との反応生成物である化合物（B）から選ばれた少なくとも 1 種の化合物 1 0 ～ 6 0 重量部を含む層を少なくとも一層有する単層または多層の脂肪族ポリエステルフィルムであって、2 0 ℃における貯蔵弾性率（E'）が 1 × 1 0⁷ ～ 2 × 1 0⁹ P a、貯蔵弾性率（E'）に対する損失弾性率（E''）の比（E'' / E'）である損失正接（tan δ）が 0. 1 ～ 1. 0 の範囲にあることを特徴とする脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 2】 脂肪族ポリエステルが、ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸との共重合体から選ばれた少なくとも 1 種のポリエステルである請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 3】 少なくとも一軸方向に 1. 5 ～ 5 倍延伸された請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 4】 ヘイズが 0. 0 5 ～ 3 % である請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 5】 耐熱温度が 1 0 0 ～ 1 7 0 ℃である請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 6】 結晶化度が 1 0 ～ 6 0 % である請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 7】 厚みが 5 ～ 1 0 0 0 μ m である請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 8】 包装用フィルムである請求項 1 記載の脂肪族ポリエステルフィルム。

【請求項 9】 請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の脂肪族ポリエステルフィルムを用いて、被包装物を包装した包装体。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】本発明は、脂肪族ポリエステルフィルム、及び該フィルムを用いた包装体に関する。詳しくは、自然環境下で分解性を有し、優れた柔軟性と密着性を有する脂肪族ポリエステルフィルム、及び該脂肪族ポリエステルフィルムを用いた包装体に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】近年、プラスチックの廃棄物問題がクロ

10

20

30

40

50

ーズアップされている。包装材料のようなプラスチック廃棄物は、使用者が使い終わった後、廃棄され、焼却処理されるか、または埋め立て等により処分されていた。しかし、このようなプラスチック廃棄物を焼却処理した場合、燃焼熱が高く、焼却炉の耐久性の問題や、ポリ塩化ビニルのようなものでは有害なガスを発生し、公害問題を引き起こしていた。さらに、埋め立てた場合には、プラスチック成形物がそのまま分解せずに、原形のままゴミとして半永久的に残り、自然環境への影響が問題となっていた。このような状況の中、自然環境下で微生物により完全に消費され、自然的副産物である炭酸ガスや水に分解する種々の生分解性プラスチックが発明され実用レベルの段階に入っている。

【0 0 0 3】特開平 6 - 3 4 0 7 5 3 号公報には、ポリ乳酸または乳酸とその他のヒドロキシカルボン酸を主成分とする熱可塑性ポリマーからなる組成物が、例えば、分解性のカードとして用い得ること、そして、それは機械的強度が高く、実用に耐えうる耐久性を示すことが開示されている。しかし、該ポリマーは弾性率および剛性が高く、柔軟性に乏しいため、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等の軟質フィルムが使用されている用途には適していなかった。

【0 0 0 4】一般に、樹脂を軟質化する方法として、（1）可塑剤の添加、（2）コポリマー化、（3）軟質ポリマーのブレンド、（4）軟質ポリマーとの積層等の方法が知られている。その中で、（1）については、過去に様々な可塑剤を用いた軟質化の検討がなされている。例えば、特開平 4 - 3 3 5 0 6 0 号公報には、ポリ乳酸に可塑剤を添加した組成物が開示されている。その中で具体的な例として、アジピン酸ジイソブチル、セバシン酸ジオクチル等が可塑剤として挙げられている。しかし、これらの化合物を可塑剤として用いたフィルムは、柔軟性はかなり改善されるものの、経時につれて可塑剤が浮き出す等の問題がある。

【0 0 0 5】また、（3）の方法では、本課題の一つである生分解性を考慮すると、ブレンドする樹脂としては、柔軟性を有する生分解性樹脂に限定される。このような樹脂としては、例えば、ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート、ポリカプロラクトン等が挙げられ、既に特開平 8 - 2 4 5 8 6 6 号公報、および特開平 9 - 1 1 1 1 0 7 号公報に開示されている。しかし、これらの樹脂をブレンドした場合、透明性や耐熱性が低下する等の問題がある。また、（4）の方法では、（3）と同様に生分解性を考慮して、積層する樹脂を選択することにより、柔軟性が付与される。しかし、これらの樹脂と積層した場合、（3）の場合と同様に透明性や耐熱性が低下する等の問題がある。

【0 0 0 6】

【発明が解決しようとする課題】本発明の解決課題は、自然環境下で分解性を有し、優れた柔軟性と密着性を有

し、しかも可塑剤がブリードアウトすることがない脂肪族ポリエステルフィルム、及び該フィルムを用いた包装体を提供することにある。

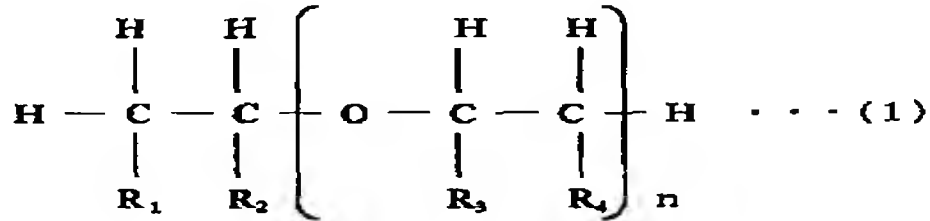
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、脂肪族ポリエステルに対し、可塑剤として特定の化合物を用いることにより、可塑剤がブリードアウトすることがなく、優れた透明性、耐熱性、柔軟性及び密着性を有する脂肪族ポリエステルが得られることを見出し、本発明に到った。

【0008】即ち、本発明の要旨は、脂肪族ポリエステル100重量部に対し、一般式(1)〔化2〕

【0009】

【化2】



【0010】(式中、nは1～10の整数、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_4$ は炭素数1～18のアシル基である)で示される化合物

(A)、及びグリセリン1～10分子の縮合物と炭素数6～18のカルボン酸との反応生成物である化合物

(B)から選ばれた少なくとも1種の化合物10～60重量部を含む層を少なくとも一層有する単層または多層の脂肪族ポリエステルフィルムであって、20℃における貯蔵弾性率(E')が $1 \times 10^7 \sim 2 \times 10^9 \text{ Pa}$ 、貯蔵弾性率(E')に対する損失弾性率(E'')の比

(E''/E')である損失正接($\tan \delta$)が0.1～1.0の範囲にあることを特徴とする脂肪族ポリエステルフィルムである。また、本発明の他の発明は、前記脂肪族ポリエステルフィルムを用いて被包装物を包装した包装体である。

【0011】本発明に係わる脂肪族ポリエステルフィルムは、優れた耐熱性、柔軟性、透明性及び密着性を有し、しかも可塑剤がブリードアウトしない。更に、脂肪族ポリエステルとして、ポリ乳酸、乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸との共重合体等を用いた場合には、加水分解性を有するので、使用した後に廃棄しても自然環境下に蓄積することがない。そのため、食品、電子、医療、薬品、化粧品等の各種包装用フィルム、農業用フィルム、土建・建築用フィルム、粘着テープの基材フィルム等の広範囲における資材として好適に使用し得る。特に、食品類の包装材料として好適である。本発明の包装体の被包装物が食品である場合、包装材料と被包装物を分離することなしに、例えば、堆肥化处理等が可能である。

【0012】尚、本発明における貯蔵弾性率(E')、及び貯蔵弾性率(E')に対する損失弾性率(E'')

の比(E''/E')である損失正接($\tan \delta$)は、後述の実施例に記載した方法により測定した値を意味する。

【0013】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。先ず、本発明に係わる脂肪族ポリエステルフィルムに用いる脂肪族ポリエステル組成物について説明する。本発明に用いる脂肪族ポリエステル組成物は、脂肪族ポリエステルに、可塑剤として前記化合物(A)及び化合物(B)から選ばれた少なくとも1種の化合物を添加、混合することにより製造される。

【0014】本発明に用いる脂肪族ポリエステルは、分子中に乳酸単位を含む脂肪族ポリエステルである。具体的には、(1)ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸とのコポリマー、(2)多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル、(3)脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位、及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル、及び(4)これらの混合物である。以下、これらを総称して乳酸系ポリマーという。これらの内、得られるフィルムの透明性、加水分解性等を考慮すると、ポリ乳酸、及び乳酸と他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸とのコポリマーが好ましい。

【0015】乳酸には、L-体とD-体とが存在するが、本発明において単に乳酸という場合は、特にことわりのない限り、L-体とD-体との両者を指すこととする。また、ポリマーの分子量は特にことわりのない限り、重量平均分子量を指すこととする。本発明に用いるポリ乳酸としては、構成単位がL-乳酸のみからなるポリ(L-乳酸)、D-乳酸のみからなるポリ(D-乳酸)、及びL-乳酸単位とD-乳酸単位とが種々の割合で存在するポリ(DL-乳酸)等が挙げられる。乳酸-他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマーのヒドロキシカルボン酸としては、グリコール酸、3-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ吉草酸、5-ヒドロキシ吉草酸、6-ヒドロキシカプロン酸等が挙げられる。

【0016】本発明に用いるポリ乳酸の製造方法として、L-乳酸、D-乳酸、またはDL-乳酸を直接脱水縮合する方法、これら各乳酸の環状2量体であるラクチドを開環重合する方法等が挙げられる。開環重合は、高級アルコール、ヒドロキシカルボン酸等の水酸基を有する化合物の存在下で行ってもよい。何れの方法によって製造されたものでもよい。乳酸-他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマーの製造方法として、上記各乳酸と上記ヒドロキシカルボン酸を脱水重縮合する方法、上記各乳酸の環状2量体であるラクチドと上記ヒドロキシカルボン酸の環状体を開環共重合する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。共重合体に含まれる乳酸単位の量は少なくとも40モル%であることが好ましい。

【0 0 1 7】多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル⁵の製造に用いる多官能多糖類としては、例えば、セルロース、硝酸セルロース、メチルセルロース、エチルセルロース、セルロイド、ビスコースレーヨン、再生セルロース、セロハン、キュプラ、銅アンモニアレーヨン、キュプロファン、ベンベルグ、ヘミセルロール、デンプン、アクロペクチン、デキストリン、デキストラン、グリコーゲン、ペクチン、キチン、キトサン、アラビアガム、グァーガム、ローカストビーンガム、アカシアガム等、及びこれらの混合物、及びこれらの誘導体¹⁰が挙げられる。これらの内で特に酢酸セルロース、エチルセルロースが好ましい。

【0 0 1 8】多官能多糖類及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステル⁵の製造方法として、上記多官能多糖類と上記ポリ乳酸、乳酸¹⁰—他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマー等を反応する方法、上記多官能多糖類と上記各乳酸、環状エステル類等を反応する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。該脂肪族ポリエステルに含まれる乳酸単位の量は少なくとも5 0 モル%であることが望ましい。

【0 0 1 9】脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステルの製造に用いる脂肪族多価カルボン酸としては、例えば、シュウ酸、コハク酸、マロン酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸等、及びこれらの無水物が挙げられる。これらは、酸無水物との混合物であってもよい。また、脂肪族多価アルコールとしては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリ³⁰コール、1，3－ブタンジオール、1，4－ブタンジオール、3－メチル－1，5－ペンタンジオール、1，6－ヘキサンジオール、1，9－ノナンジオール、ネオペンチルグリコール、テトラメチレングリコール、1，4－シクロヘキサンジメタノール等が挙げられる。

【0 0 2 0】脂肪族多価カルボン酸単位、脂肪族多価アルコール単位及び乳酸単位を含む脂肪族ポリエステルの製造方法として、上記脂肪族多価カルボン酸及び上記脂肪族多価アルコールと、上記ポリ乳酸、乳酸⁴⁰—他の脂肪族ヒドロキシカルボン酸コポリマー等を反応する方法、上記脂肪族多価カルボン酸及び上記脂肪族多価アルコールと、上記各乳酸、環状エステル類等を反応する方法等が挙げられる。何れの方法によって製造されたものでもよい。該脂肪族ポリエステルに含まれる乳酸単位の量は少なくとも5 0 モル%であることが好ましい。

【0 0 2 1】脂肪族ポリエステルの分子量は、フィルムの加工性、得られるフィルムの強度及び分解性に影響を及ぼす。分子量が低いと得られるフィルムの強度が低下し、使用する際に張力で破断することがある。また、分解速度が早くなる。逆に分子量が高いと加工性が低下

し、フィルム製膜が困難となる。かかる点を考慮すると、脂肪族ポリエステルの分子量は、約1 万～約1 0 0 万程度の範囲が好ましい。さらに好ましい範囲は1 0 万～3 0 万である。

【0 0 2 2】本発明では、脂肪族ポリエステルの可塑剤として、上記一般式（1）で表される化合物（A）、及びグリセリン1～1 0 分子の縮合物と炭素数6～1 8 のカルボン酸との反応生成物である化合物（B）から選ばれた少なくとも1 種の化合物が用いられる。これらの可塑剤の添加量は、得られる延伸フィルムの結晶化度、柔軟性、耐熱性等に影響を及ぼす。添加量が多すぎると結晶化度及び耐熱性が低下する。少なすぎると十分な柔軟性が得られない。かかる観点から、可塑剤としての上記化合物（A）及び／又は（B）の添加量は、脂肪族ポリ⁵⁰エステル1 0 0 重量部に対し1 0～6 0 重量部であることが好ましい。さらに好ましくは1 5～5 0 重量部である。

【0 0 2 3】本発明の脂肪族ポリエステル組成物には、主成分である脂肪族ポリエステル、上記化合物（A）、及び上記化合物（B）の他に、用途に応じて、本発明の目的を損なわない範囲で、シリカ、炭酸カルシウム、チタニア、マイカ、タルク等のアンチブロッキング剤、流動パラフィン、ポリエチレンワックス等の炭化水素類、ステアリン酸等の脂肪酸類、オシキ脂肪酸類、脂肪酸アミド類、アルキレンビス脂肪酸アミド類、脂肪酸低級アルコールエステル類、脂肪酸多価アルコールエステル類、脂肪酸ポリグリコールエステル類、脂肪族アルコール類、多価アルコール類、ポリグリコール類、ステアリン酸カルシウム等の金属石鹸類等の滑剤、脂肪酸塩類、高級アルコール硫酸エステル類、液体脂肪油硫酸エステル塩類、脂肪族アミンおよび脂肪族アミド硫酸塩類、脂肪族アルコールリン酸エステル塩類、二塩基性脂肪酸⁵⁰エステルのスルホン酸塩類、脂肪族アミドスルホン酸塩類、アルキルアリルスルホン酸塩類、脂肪族アミン塩類、第4 級アンモニウム塩類、アルキルピリジウム塩類、ポリオキシエチエンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルフェノールエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルエステル類、ソルビタンアルキルエステル類、ポリオキシエチレンソルビタンアルキルエステル類、イミダゾリン誘導体、高級アルキルアミン類等の帯電防止剤、グリセリンモノステアレート等のグリセリン脂肪酸エステル、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノオレート等のソルビタン脂肪酸エステル、ポリグリセリン脂肪酸エステル、プロピレングリコール脂肪酸エステル等の防曇剤、2－（2’－ヒドロキシ－5’－メチルフェニル）ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール類や、2－ヒドロキシ－4－メトキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン類、サリチル酸p－tert－ブチルフェニル等のサリチル酸誘導体等の紫外線吸収剤、パラメトキシフェノール等のフェノール系、トリフ

7
エニルホスファイト等のホスファイト系、2-メルカプトベンズイミダゾール等の硫黄系、フェニルナフチルアミン等のアミン系の熱安定剤、酸化防止剤、着色防止剤、硫酸バリウム、酸化チタン、カオリン、カーボンブラック等の充填剤、顔料、デカブロモジフェニルエーテル等のハロゲン系、三酸化アンチモン等のアンチモン系の難燃剤等の他の添加剤を添加してもよい。

【0024】次いで、本発明の脂肪族ポリエステルフィルム、及びその製造方法の一例について説明する。脂肪族ポリエステルに可塑剤を添加、混合する方法としては、脂肪族ポリエステルと可塑剤、場合によっては他の添加剤を高速攪拌機または低速攪拌機などを用いて均一に混合した後、十分な混練能力を有する一軸あるいは多軸の押出機を用いて溶融混練する方法等を採用することが出来る。本発明に係る樹脂組成物の形状は、通常、ペレット、棒状、粉末等が好ましい。

【0025】以上のようにして得られた樹脂組成物を、Tダイが装着された押出機を用いる溶融押出法によりフィルム状に成形する。好ましくは、得られたフィルムをロール延伸によって流れ方向（機械方向、以下、MD方向）に延伸した後、テンター延伸によって横方向（機械方向と直交する方向、以下、TD方向）に延伸する。延伸の順序は上記の逆でもよい。延伸後、緊張下で熱処理することにより脂肪族ポリエステル延伸フィルムが製造される。一軸延伸する場合は、MD方向、TD方向のいずれに延伸してもよい。

【0026】上記各種の添加剤を含む脂肪族ポリエステル組成物の溶融押出温度は、好ましくは100～280℃、より好ましくは130～250℃の範囲である。成形温度が低いと成形安定性が得難く、また過負荷に陥り易い。逆に、成形温度が高いと脂肪族ポリエステルが分解することがあり、分子量低下、強度低下、着色等が起るので好ましくない。

【0027】本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、MD方向及びTD方向の少なくとも一軸方向に、1.5～5倍延伸することが好ましい。更に好ましくは、MD方向及びTD方向に2軸延伸された2軸延伸フィルムである。延伸フィルムを製造する場合、延伸倍率が1.5倍未満であると、力学物性や寸法精度の経時安定性をもたらす結晶化が進行し難い。また、5倍を超えると、フィルムの柔軟性がなくなると共に、延伸時にフィルム破れ等が生じ好ましくない。延伸温度は用いる脂肪族ポリエステルのガラス転移温度（Tg）～（Tg+50）℃の範囲が好ましい。さらに好ましくは、Tg～（Tg+30）℃の範囲である。延伸温度がTg未満では延伸が困難であり、（Tg+50）℃を超えると均一な延伸が困難となり好ましくない。また、耐熱性及び寸法安定性向上のため、延伸後緊張下にて（Tg+10）℃以上、融点未満の温度で熱処理を行う。この際、延伸、熱処理条件を変化させることにより、フィルムの結晶化度を制

御することができる。

【0028】上記条件で延伸及び熱処理を施すことにより、結晶化度が10～60%である延伸フィルムが得られる。好ましい結晶化度は20～50%である。例えば、乳酸系ポリマー100重量部に対して、上記化合物（A）のうち、R₁～R₄が全て炭素数1のアシル基、nが1である化合物を20重量部添加し、Tダイを用いて製膜した後、50℃にて、機械方向に2.5倍、幅方向に2.5倍（以下、2.5×2.5と略記する）に延伸する。その後、緊張下にて140℃で熱処理を行うことにより、結晶化度30%程度の延伸フィルムが得られる。

【0029】本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、目的に応じて工程条件を設定することにより、ロール状、テープ状、カットシート状、筒状（シームレス状）に製造することができる。

【0030】本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、ショッピングバッグ、ゴミ袋、コンポストバッグ、食品・菓子包装フィルム、食品包装用ラップフィルム、化粧品・化粧品用ラップフィルム、医薬品用ラップフィルム、生薬用ラップフィルム、肩こりや捻挫等に適用される外科用貼付薬用ラップフィルム、農業用・園芸用フィルム、農薬品用ラップフィルム、温室用フィルム、肥料用袋、ビデオやオーディオ等の磁気テープカセット製品包装用フィルム、フロッピー（登録商標）ディスク包装用フィルム、製版用フィルム、粘着テープ、防水シート、土嚢用袋、等として、好適に使用することができる。これらの用途の内、好ましくは包装用フィルムとして使用され、包装体が形成される。その場合の被包装物としては、野菜類、果物類、菓子類等の食品、化粧品、医薬品、農薬品、肥料、土壌、家庭ゴミ類、コンポスト、ビデオ、CD等の電子・電気製品等が挙げられる。本発明のポリエステルフィルムの厚みは用途に応じて適宜替え得るが、通常、5～1000μmの範囲である。

【0031】本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、ヒートシール、高周波シールおよび溶断等の方法によって、袋状に加工することができる。例えば、カットシート状に製造されたフィルムを2つ折にし、折り目の側辺の2辺をフィルムのTg（ガラス転移温度）以上の温度のヒートシールバーを用いて、ヒートシールすることにより、袋が得られる。また、ロール状のフィルムを解反しながら、幅方向に2つ折にし、フィルムの融点以上の温度の溶断バーを用いて、長さ方向に一定間隔で溶断することにより、袋が得られる。また、筒状のフィルムを解反しながら、Tg以上の温度のヒートシールバーを用いて、長さ方向に一定間隔でヒートシールした後、シール部の直近を同間隔でカットすることにより、袋が得られる。

【0032】本発明の脂肪族ポリエステル延伸フィルムは、必要に応じてフィルム表面に帯電防止性、防曇性、

9

粘着性、ガスバリアー性、密着性および易接着性等の機能を有する層をコーティングにより形成することができる。例えば、フィルムの片面あるいは両面に、帯電防止剤を含む水性塗工液を塗布、乾燥することによって帯電防止層を形成することができる。水性塗工液を塗布する方法は、公知の方法が適用できる。すなわち、スプレーコート方式、エアークナイフ方式、リバースコート方式、キスコート方式、グラビアコート方式、マイヤーバー方式、ロールブラッシュ方式等が適用できる。

【0033】また、アクリル樹脂系粘着剤、例えば、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート等を主成分とし、他のビニル系モノマーを共重合せしめたコポリマーを、有機溶剤中に均一に溶解した溶剤系および水中に粒子状に分散させた水エマルジョン系の塗布液を公知の方法でフィルムに塗布、乾燥させ、粘着性を付与することができる。

【0034】本発明の脂肪族ポリエステルフィルムは、必要に応じて、他樹脂およびフィルムをラミネートすることにより、帯電防止性、防曇性、粘着性、ガスバリアー性、密着性および易接着性等の機能を有する層をコーティングにより形成することができる。その際、押出ラミ、ドライラミ等の公知の方法を用いることができる。

【0035】本発明における脂肪族ポリエステルフィルムにおいては、20℃における貯蔵弾性率(E')が $1 \times 10^7 \sim 2 \times 10^9$ Paであり、良好な柔軟性を有する。また、20℃における損失正接(tanδ)が0.1～1.0であり、良好な自己密着性および被包装体等との密着性を有する。また、ヘイズが0.05～3%、耐熱温度が100～170℃、結晶化度が10～60%である。本発明の脂肪族ポリエステルフィルムを少なくとも1軸方向に延伸して得られる脂肪族ポリエステル延伸フィルムの特性についても上記とほぼ同様である。

【0036】

【実施例】以下、実施例を示して本発明についてさらに詳細に説明する。尚、〔表1〕～〔表3〕に記載した記号は下記を意味する。

A1：一般式(1)におけるR₁～R₄が全て炭素数1のアシル基、nは1。

A2：一般式(1)におけるR₁～R₄が全て炭素数8のアシル基、nは1。

A3：一般式(1)におけるR₁～R₄が全て炭素数18のアシル基、nは2。

A4：一般式(1)におけるR₁～R₄が全て炭素数22のアシル基、nは9。

B1：デカグリセリンプロピオネート。

B2：テトラグリセリンカプリレート。

B3：デカグリセリンベヘネート。

【0037】また、この実施例に示す結晶化度、貯蔵弾性率、tanδ、ヘイズ、および耐熱温度の評価は、以下に示す方法で行った。

【0038】(1)結晶化度(%)

示差走査熱量計〔リガク(株)製、形式：TAS100〕を用い、融解曲線のピーク面積より、融解熱量(ΔH)を求め、完全結晶の融解熱量(ΔH₀)より下記数式(数1)により結晶化度(X_c)を算出する。なお、標準物質としてはインジウムを用いる。

$$X_c = \Delta H / \Delta H_0 \cdots (数1)$$

【0039】(2)貯蔵弾性率 E' (Pa)、tanδ

動的固体粘弾性測定装置〔レオメトリクス社製、型式：RSAII〕を用いて、長さ40mm(MD方向)、幅5mm(TD方向)、厚み約10μmのフィルムについて、測定温度範囲-100～230℃、昇温速度5℃/min、周波数1Hzの条件下で測定を行ない、20℃における貯蔵弾性率(E')を読み取り、損失弾性率(E'')と貯蔵弾性率(E')との比(E''/E')であるtanδを算出する。

【0040】(3)ヘイズ(%)

東京電色(株)製、ヘイズMeterを使用して測定し、ヘイズ値(%)を求める。

【0041】(4)耐熱温度(℃)

MD方向14cm、TD方向3cmのフィルムと同じ幅の板目紙をフィルムと重ねてフィルムの機械方向の両端部2.5cmの部分を粘着テープで板目紙と貼り合わせて固定したものを試料とする。板目紙で補強した試料フィルムのそれぞれの両端2.5cmの部分の上部を全幅にわたって治具に固定し、下端中央部に10gの荷重をかけ、一定温度に調製したエアークオープン中に迅速に入れ、1時間加熱したときの試料の切断の有無を調べる。

試験温度は5℃刻みに上昇させた。1時間経過後、試料が切断しなかった場合は、温度を5℃上げ前記の操作を繰り返す。試料が切断しない最高温度を耐熱温度とする。

【0042】調製例1

Dien-Starkトラップを設置した100リットル反応容器に、90モル%L-乳酸(不純物の含有量0.5モル%)10kgを150℃、7000Paにおいて3時間攪拌しながら水を留出させた後、錫末6.2gを加え、150℃、4000Paにおいてさらに2時間攪拌してオリゴマー化した。このオリゴマーに錫末28.8gとジフェニルエーテル21.1kgを加え、150℃、4700Paにおいて共沸脱水反応を行い留出した水と溶媒を水分分離機で分離して、水層を逐次抜き出し、溶媒のみを反応器に戻した。2時間後(この時点で不純物の含有量は0.05モル%であった)、反応器に戻す有機溶媒を4.6kgのモレキュラーシーブ3Aを充填したカラムに通してから反応器に戻すようにして、150℃、4700Paにおいて反応を行い、ポリスチレン換算重量平均分子量12万のポリ乳酸溶液を得た。この溶液に脱水したジフェニルエーテル44kgを

加え希釈した後、4 0℃まで冷却して、析出した結晶をろ過し、1 0 k g の n -ヘキサンで3回洗浄して6 0℃、7 0 0 0 P a において乾燥した。この粉末を0. 5 N塩酸1 2 k g とエタノール1 2 k g を加え、3 5℃で1時間攪拌した後ろ過し、6 0℃、7 0 0 0 P a で乾燥して、平均粒径3 0 μ m のポリ乳酸粉末6. 1 k g (収率8 5 重量%)を得た。このポリマーのポリスチレン換算重量平均分子量は約1 2 万であった。

【0 0 4 3】実施例 1

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 1 : 3 0 重量部および化合物 B 1 : 5 重量部を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ8 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2. 5 倍、次いで横方向に3 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は1 5 %であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 4】実施例 2

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 1 : 2 5 重量部を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ6 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2 倍、次いで横方向に2. 5 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は2 5 %であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 5】実施例 3

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 B 1 : 1 5 重量部および化合物を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ6 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2 倍、次いで横方向に3 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は1 5 %であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 6】実施例 4

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 2 : 5 5 重量部を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ5 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に1. 5 倍、次いで横方向に2. 5 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フ

ィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は1 2 %であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 7】実施例 5

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 B 1 : 5 0 重量部および化合物を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ8 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2. 5 倍、次いで横方向に3 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は1 5 %であった。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 8】実施例 6

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 3 : 4 0 重量部を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ4 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムの両面に、調製例 1 で得られたポリマーからなる厚さ1 0 μ m のフィルムを張り合せた後、長さ方向に2. 5 倍、次いで横方向に3 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 4 9】実施例 7

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 3 : 3 0 重量部を含むペレットを、1 8 0℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ6 0 μ m の未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムの両面に、ポリブチレンサクシネートからなる厚さ1 0 μ m のフィルムを張り合せた後、この未延伸フィルムを長さ方向に2. 5 倍、次いで横方向に3 倍延伸し、1 3 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み1 0 μ m の延伸フィルムを得た。弾性率、tan δ、ヘイズ、および耐熱温度の評価を行った結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 5 0】実施例 8

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 1 : 2 0 重量部を含むペレットを、4 0 mm のインフレーション成形機(ダイス径4 0 mm)にて、1 7 0℃で成形し、折り径1 5 0 mm、厚み1 2 μ m のインフレーションフィルムを得た。得られたフィルムを1 4 0℃で熱処理を行った後、3 0℃の空気を用いてフィルムを冷却した。このフィルムの結晶化度は1 8 %であった。評価結果を〔表 1〕に示す。

【0 0 5 1】比較例 1

調製例 1 で得られたポリマー 1 0 0 重量部に対し、化合物 A 1 : 5 重量部を含むペレットを、1 8 0℃において

10

20

30

40

50

Tダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ80μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2.5倍、次いで横方向に3.5倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は30%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

【0052】比較例2

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物B1：5重量部を含むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ80μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2.5倍、次いで横方向に3倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み11μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は35%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

【0053】比較例3

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物A1：70重量部を含むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ70μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2倍、次いで横方向に3倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は15%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

【0054】比較例4

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合*

*物A1：50重量部および化合物B1：30重量部を含むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ50μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に1.5倍、次いで横方向に2.5倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10μmの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は12%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

10 【0055】比較例5

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物A4：20重量部を含むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ60μmの未延伸フィルムを得た。この未延伸フィルムを長さ方向に2倍、次いで横方向に2.5倍延伸し、130℃で熱処理を行った後、30℃の空気を用いてフィルムを冷却し平均厚み10mの延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は20%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

20 【0056】比較例6

調製例1で得られたポリマー100重量部に対し、化合物A1：30重量部を含むペレットを、180℃においてTダイが装着された押出機を用いて混練、熔融して押出し、厚さ10μmの未延伸フィルムを得た。得られたフィルムの結晶化度は4%であった。評価結果を〔表2〕に示す。

【0057】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
化合物A	種類	A1	A1	—	A2	—	A3	A3	A1
	重量部	30	25	—	55	—	30	40	20
化合物B	種類	B1	—	B1	—	B2	—	—	—
	重量部	5	—	15	—	50	—	—	—
構成		単層	単層	単層	単層	単層	多層	多層	単層
延伸倍率(倍)		2.5×3.0	2.0×2.5	2.0×3.0	1.5×2.5	2.5×3.0	2.5×3.0	2.5×3.0	1.3×3.0
結晶化度		15	25	15	12	15	—	—	18
弾性率(Pa)		1×10 ⁹	6×10 ⁸	8×10 ⁸	6×10 ⁷	1×10 ⁸	5×10 ⁸	6×10 ⁸	1.2×10 ⁸
tanδ		0.4	0.5	0.4	0.6	0.5	0.5	0.4	0.5
ヘイズ(%)		0.8	1.0	0.9	0.6	0.8	0.8	2.5	0.9
耐熱温度(℃)		135	140	150	130	135	135	140	130

【0058】

【表2】

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
化合物A	種類	A1	—	A1	A2	A4	A1
	重量部	5	—	70	50	20	30
化合物B	種類	—	B1	—	B2	—	—
	重量部	—	5	—	30	—	—
構成		単層	単層	単層	単層	単層	単層
延伸倍率 (倍)		2.5×3.0	2.5×3.5	2.0×3.0	1.5×2.5	2.0×2.5	—
結晶化度		30	35	15	12	20	4
弾性率 (Pa)		2.5×10 ⁹	3.1×10 ⁹	8×10 ⁸	6×10 ⁸	2.4×10 ⁹	1.2×10 ⁹
tan δ		0.2	0.2	0.8	0.9	0.2	0.7
ヘイズ (%)		0.8	1.0	0.9	0.8	1.1	1.1
耐熱温度 (℃)		150	150	110	110	140	90

【0059】実施例9
実施例1で得られたフィルムを、長さ180mm、幅500mmに切り、幅方向に2つ折にした後、折り目の側辺の二辺を100℃でヒートシールすることにより、開口部の幅約175mm、深さ250mmの袋を得た。得られた袋にトマト約500gを充填し、袋の開口部を絞り、結束テープで固定し、包装体を得た。

【0060】実施例10
実施例8で得られた折り径150mm、厚み12μmのインフレーションフィルムを長さ方向に、250mm間隔で、溶断温度280℃にて溶断シールした後、同間隔でカットすることにより、開口部の幅150mm、深さ約245mmの袋を得た。得られた袋に人参約500g＊

＊を充填し、袋の開口部を絞り、結束テープで固定し、包装体を得た。

【0061】
20 【発明の効果】本発明に係わる脂肪族ポリエステルフィルムは、脂肪族ポリエステルが乳酸系ポリマーである場合、乳酸系ポリマーが本来有する自然環境下での分解性を維持し、優れた耐熱性、柔軟性、透明性及び密着性を有し、しかも表面に可塑剤がブリードアウトすることがない。そのため、食品、電子、医療、薬品、化粧品等の各種包装用フィルム、農業用フィルム、土建・建築用フィルム、粘着テープ等の広範囲における資材として好適に使用し得る。使用した後、廃棄されても産業廃棄物、家庭廃棄物として蓄積することがない。

フロントページの続き

(51)Int. Cl. ⁷		識別記号	F I	デマコード (参考)
C O 8 K	5/103		C O 8 K 5/103	
C O 8 L	67/04	Z B P	C O 8 L 67/04	Z B P
(72)発明者	北原 泰広			
	千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内			
(72)発明者	竹原 明宣			
	千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内			
(72)発明者	大淵 省二			
	千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 三井化学株式会社内			

F ターム(参考) 3E064 AA03 AA09 BA54 BC01 BC13
BC16 BC20
3E086 AB01 AD01 BA04 BA15 BB57
BB90 CA01 CA27 CA28 CA31
4F071 AA43 AA89 AC06 AC10 AF13
AF30Y AF45Y AH04 BB07
BC01 BC12
4F100 AH02A AK41A AK41B AK41C
AL01A AL05A BA03 BA06
BA10A BA10C EH01 EJ37A
EJ38 GB15 JA20A JB20A
JC00 JJ03A JK07A YY00A
4J002 CF031 CF181 ED026 EH047
GG02